

DT05 Rec'd PCT/PTO 0 2 DEC 2004

DOCKET NO.: 261999US6PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Volker DIEHL, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/EP03/06516

INTERNATIONAL FILING DATE: June 20, 2003

FOR: METHOD OF DELIVERING A FLUID F WHICH CONTAINS AT LEAST ONE (METH) ACRYLIC MONOMER

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Germany	102 28 859.3	27 June 2002

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/EP03/06516. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Gregory J. Maier
Attorney of Record
Registration No. 25,599
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number

22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)

BEST AVAILABLE COPY

REQU 06 AOUT 2003

OMPI PCT

EP 03 / 6516



**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 102 28 859.3
Anmeldetag: 27. Juni 2002
Anmelder/Inhaber: BASF Aktiengesellschaft,
Ludwigshafen/DE
Bezeichnung: Verfahren zum Fördern einer wenigstens ein
(Meth)acrylmonomeres enthaltenden Flüssig-
keit F
IPC: F 04 D 7/02

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 27. März 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Hiebinger

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

BEST AVAILABLE COPY

Patentansprüche

1. Verfahren zum Fördern einer wenigstens ein (Meth)acrylmonome-
5 res enthaltenden Flüssigkeit F mittels einer Förderpumpe, die
- a) einen Pumpraum,
 - b) einen Antriebsraum und
 - 10 c) einen den Pumpraum und den Antriebsraum voneinander tren-
nenden Trennraum
- aufweist, und wobei
- 15 - der Pumpraum wenigstens ein Förderelement zur Förderung
der Flüssigkeit F enthält;
 - die Flüssigkeit F dem Pumpraum mit einer Eingangsenergie
 - 20 zugeführt wird;
 - die Flüssigkeit F den Pumpraum mit einer Ausgangsenergie
verlässt, die größer als die Eingangsenergie ist;
 - 25 - aus dem Antriebsraum heraus eine im Antriebsraum ange-
triebene Welle durch den Trennraum hindurch in den Pump-
raum hinein geführt wird;
 - das im Pumpraum enthaltene wenigstens eine Förderelement
 - 30 mit der in den Pumpraum hinein geführten Antriebswelle so
verbunden ist, daß die Antriebswelle auf das Förderele-
ment ein Drehmoment übertragen kann;
 - der Trennraum mit einem Sperrmedium gefüllt ist, das aus
 - 35 einem Sperrgas und/oder aus einer Sperrflüssigkeit be-
steht, und von der Flüssigkeit F verschieden ist; und
 - keine Lagerung der Antriebswelle innerhalb des Pumpraumes
erfolgt,
 - 40
- dadurch gekennzeichnet,

2

daß der Druck des Sperrmediums größer ist als der Druck im Pumpraum und als der Druck im Antriebsraum, und

- 5 daß der durch den Trennraum führende Abschnitt der Antriebswelle sowohl zum Pumpraum als auch zum Antriebsraum hin jeweils mit der Antriebswelle fest und undurchlässig verbundene Gleitelemente trägt, die auf den durch die Antriebswelle durchstoßenen Innenwänden des Trennraums abdichtend gleiten.
- 10 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Förderpumpe eine Kreiselpumpe oder eine Seitenkanalpumpe ist.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das verwendete Sperrmedium ein Gemisch aus Ethylenglycol und
- 15 Wasser ist.
4. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das verwendete Sperrmedium ein Sauerstoff enthaltendes Gas ist.
- 20 5. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Trennraum 0,2 bis 0,5 ml/h an Sperrmedium verliert.
6. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der
- 25 Trennraum 120 bis 150 Nml/h an Sperrmedium verliert.
7. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Sperrmedium 30 bis 40 Gew.-% Ethylenglycol enthält.
- 30 8. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Sperrmedium 4 bis 21 Vol.-% Sauerstoff enthält.
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß das Gleitelement aus SiC gefertigt ist.
- 35 10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Flüssigkeit eine (Meth)acrylsäure ist, die ≥ 95 Gew.-% an (Meth)acrylsäure enthält.

40

45

Verfahren zum Fördern einer wenigstens ein (Meth)acrylmonomeres enthaltenden Flüssigkeit F

5 Beschreibung

Vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zum Fördern einer wenigstens ein (Meth)acrylmonomeres enthaltenden Flüssigkeit F mittels einer Förderpumpe, die

10

a) einen Pumpraum,

b) einen Antriebsraum und

15 c) einen den Pumpraum und den Antriebsraum voneinander trennenden Trennraum

aufweist, und wobei

20 - der Pumpraum wenigstens ein Förderelement zur Förderung der Flüssigkeit F enthält;

- die Flüssigkeit F dem Pumpraum mit einer Eingangsenergie zugeführt wird;

25

- die Flüssigkeit F den Pumpraum mit einer Ausgangsenergie verlässt, die größer als die Eingangsenergie ist;

- aus dem Antriebsraum heraus eine im Antriebsraum angetriebene Welle durch den Trennraum hindurch in den Pumpraum hinein
30 geführt wird;

30

- das im Pumpraum enthaltene wenigstens eine Förderelement mit der in den Pumpraum hinein geführten Antriebswelle so verbunden ist, daß die Antriebswelle auf das Förderelement ein
35 Drehmoment übertragen kann;

35

- der Trennraum mit einem Sperrmedium gefüllt ist, das aus einem Sperrgas und/oder aus einer Sperrflüssigkeit besteht, und von der Flüssigkeit F verschieden ist; und
40

40

- keine Lagerung der Antriebswelle innerhalb des Pumpraumes erfolgt.

45 Die Schreibweise (Meth)acrylmonomere steht in dieser Schrift verkürzend für „Acrylmonomere und/oder Methacrylmonomere“.

2

Der Begriff Acrylmonomer steht in dieser Schrift verkürzend für Acrylsäure, Ester der Acrylsäure und/oder Acrylnitril.

Der Begriff Methacrylmonomer steht in dieser Schrift verkürzend für Methacrylsäure, Ester der Methacrylsäure und/oder Methacrylnitril.

Im besonderen sollen die in dieser Schrift angesprochenen (Meth)acrylmonomeren die nachfolgenden (Meth)acrylsäureester umfassen: Hydroxyethylacrylat, Hydroxyethylmethacrylat, Hydroxypropylacrylat, Hydroxypropylmethacrylat, Glycidylacrylat, Glycidylmethacrylat, Methylacrylat, Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, n-Butylmethacrylat, tert.-Butylacrylat, tert.-Butylmethacrylat, Ethylacrylat, Ethylmethacrylat, 2-Ethylhexylacrylat, 2-Ethylhexylmethacrylat, N,N-Dimethylaminoethylacrylat und N,N-Dimethylaminoethylmethacrylat.

(Meth)acrylmonomere sind wichtige Ausgangsverbindungen zur Herstellung von Polymerisaten, die z.B. als Klebstoffe Verwendung finden.

(Meth)acrylsäure wird großtechnisch überwiegend durch katalytische Gasphasenoxidation geeigneter C₃-/C₄-Vorläuferverbindungen, insbesondere von Propen und Propan im Fall von Acrylsäure bzw. von iso-Buten und iso-Butan im Fall der Methacrylsäure, hergestellt. Neben Propen, Propan, iso-Buten und iso-Butan eignen sich als Ausgangsstoffe jedoch auch andere 3 bzw. 4 Kohlenstoffatome enthaltende Verbindungen, beispielsweise iso-Butanol, n-Propanol oder der Methylether von iso-Butanol.

Dabei wird normalerweise ein Produktgasgemisch erhalten, aus dem die (Meth)acrylsäure durch absorptive, rektifikative, extraktive und/oder kristallisative Verfahren abgetrennt werden muß (vgl. z.B. DE-A 10224341). In entsprechender Weise ist (Meth)acrylnitril durch katalytische Ammoxidation von den vorgenannten C₃-/C₄-Vorläuferverbindungen und nachfolgende Abtrennung aus dem Produktgasgemisch erhältlich.

Ester der (Meth)acrylsäure sind z.B. durch direkte Umsetzung von (Meth)acrylsäure mit den entsprechenden Alkoholen erhältlich. Allerdings fallen auch in diesem Fall zunächst Produktgemische an, aus denen die (Meth)acrylsäureester z.B. rektifikativ und/oder extraktiv abgetrennt werden müssen.

Insbesondere im Zusammenhang mit den vorgenannten Abtrennungen ist es immer wieder erforderlich, (Meth)acrylmonomere in mehr oder weniger reiner Form oder in Lösung befindlich zu fördern (in

3

dieser Schrift generell als (Meth)acrylmonomere F enthaltende Flüssigkeiten bezeichnet).

Das Lösungsmittel kann dabei sowohl wäßrig als auch ein organisches Lösungsmittel sein. Die spezifische Art des Lösungsmittels ist erfindungsgemäß im wesentlichen unbeachtlich. Der Gehalt von zu fördernden Lösungen an Acrylmonomeren kann ≥ 5 Gew.-%, oder ≥ 10 Gew.-%, oder ≥ 20 Gew.-%, oder ≥ 40 Gew.-%, oder ≥ 60 Gew.-%, oder ≥ 80 Gew.-%, oder ≥ 90 Gew.-%, oder ≥ 95 Gew.-%, oder ≥ 99 Gew.-% betragen.

Im Rahmen dieses Förderns müssen Höhenunterschiede und/oder Strömungswiderstände überwunden werden. Dies ist nur dadurch möglich, daß der zu fördernden Flüssigkeit Energie zugeführt wird. Dies erfolgt üblicherweise mittels Apparaten, sogenannten Strömungsmaschinen, die auch als Pumpen bezeichnet werden.

In Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, Band 3, Seiten 155 bis 184, Verlag Chemie 1973, wird eine Vielzahl von zum Fördern von Flüssigkeiten verwendbaren Pumpen beschrieben. Zum Fördern von (Meth)acrylmonomere enthaltenden Flüssigkeiten F (z.B. solche (Meth)acrylmonomere in mehr oder weniger reiner Form oder in Lösung befindlich) ist jedoch nicht jede Pumpe geeignet. Dies ist darauf zurückzuführen, daß (Meth)acrylmonomere einerseits toxikologisch nicht völlig unbedenklich sind und andererseits durch Wärme leicht zur radikalischen Polymerisation gebracht werden können.

Die zu verwendende Pumpe sollte daher so beschaffen sein, daß sie außer dem vorgesehenen Ein- und Austritt für die zu fördernde, wenigstens ein (Meth)acrylmonomeres enthaltende, Flüssigkeit F keine nicht beabsichtigten Austrittsstellen, Undichtigkeiten aufweist. Gleichzeitig sollte sie aber so beschaffen sein, daß keine mechanisch extrem beanspruchten Bauteile (z.B. Lager von Antriebswellen) mit der Flüssigkeit F in Kontakt kommen. An solchermaßen mechanisch beanspruchten Bauteilen wird nämlich Wärme entwickelt, die eine unerwünschte radikalische Polymerisation der (Meth)acrylmonomere bedingen kann.

Die EP-A 1092874 empfiehlt deshalb in ihrer Figur 3 zur Förderung einer wenigstens ein (Meth)acrylmonomeres enthaltenden Flüssigkeit F eine Förderpumpe zu verwenden, die eine wie Eingangs dieser Schrift beschriebene Förderpumpe ist. Das Sperrmedium ist dabei ein bei Normaldruck befindliches Gas und zur Abdichtung des Trennraums gegenüber dem Antriebsraum wird eine mechanische Dich-

tung empfohlen. Die Frage der Abdichtung des Trennraums gegenüber dem Pumpraum läßt die EP-A 1092874 offen.

Nachteilig an der in Figur 3 der EP-A 1092874 empfohlenen Förderpumpe ist jedoch, daß der Pumpraum in notwendiger Weise unterhalb des Antriebsraums befindlich sein und die Antriebswelle vertikal angeordnet sein muß.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, diese Nachteile bei Verwendung einer Förderpumpe gemäß vorgenanntem Stand der Technik zu überwinden.

Demgemäß wurde ein Verfahren zum Fördern einer wenigstens ein (Meth)acrylmonomeres enthaltenden Flüssigkeit F mittels einer Förderpumpe, die

- a) einen Pumpraum (3),
 - b) einen Antriebsraum (5) und
 - c) einen den Pumpraum und den Antriebsraum voneinander trennenden Trennraum (4)
- aufweist, und wobei
- der Pumpraum wenigstens ein Förderelement (7) zur Förderung der Flüssigkeit F enthält;
 - die Flüssigkeit F dem Pumpraum mit einer Eingangsenergie zugeführt wird;
 - die Flüssigkeit F den Pumpraum mit einer Ausgangsenergie verläßt, die größer als die Eingangsenergie ist;
 - aus dem Antriebsraum heraus eine im Antriebsraum angetriebene (10) Welle (9) durch den Trennraum hindurch in den Pumpraum hinein geführt wird;
 - das im Pumpraum enthaltene wenigstens eine Förderelement mit der in den Pumpraum hinein geführten Antriebswelle so verbunden ist, daß die Antriebswelle auf das Förderelement ein Drehmoment übertragen kann;
 - der Trennraum mit einem Sperrmedium gefüllt ist, das aus einem Sperrgas und/oder aus einer Sperrflüssigkeit besteht, und von der Flüssigkeit F verschieden ist; und

- keine Lagerung (8) der Antriebswelle innerhalb des Pumpraumes erfolgt,

gefunden, das dadurch gekennzeichnet ist,

5

daß der Druck des Sperrmediums größer ist als der Druck im Pumpraum und als der Druck im Antriebsraum, und

- daß der durch den Trennraum führende Abschnitt der Antriebswelle
- 10 sowohl zum Pumpraum als auch zum Antriebsraum hin jeweils mit der Antriebswelle fest und undurchlässig verbundene Gleitelemente (6) trägt, die auf den durch die Antriebswelle durchstoßenen Innenwänden des Trennraums abdichtend gleiten (Prinzip der doppelt (auf beiden Seiten) wirkenden Gleitelement(z.B. Ring)dichtung).

15

- Die in Klammern gesetzten numerischen Adressen beziehen sich auf die Figur 1 dieser Schrift, die eine schematische Abbildung einer erfindungsgemäß zu verwendenden Förderpumpe zeigt. Die Adressen (1) und (2) bezeichnen die Eintritts- bzw. die Austrittsstelle
- 20 der Flüssigkeit F in die bzw. aus der Förderpumpe.

- Erfindungsgemäß bevorzugt ist der Druck im Trennraum wenigstens 1 bar größer, als der Druck an der dem Gleitelement gegenüberliegenden Stelle im Pumpraum. Häufig beträgt dieser Druckunterschied
- 25 ≥ 2 bar, oder ≥ 3 bar. In der Regel wird dieser Druckunterschied ≤ 10 bar betragen.

- Wird als Sperrmedium beim erfindungsgemäßen Verfahren ein Gas verwendet, so handelt es sich bevorzugt um ein Sauerstoff enthaltendes Gas, da molekularer Sauerstoff auf (Meth)acrylmonomere
- 30 polymerisationsinhibierend wirkt. Diese polymerisationsinhibierende Wirkung entfaltet sich insbesondere im Zusammenspiel mit den in der Flüssigkeit F üblicherweise enthaltenen Polymerisationsinhibitoren wie z.B. Phenothiazin oder Methoxyphenol. Selbstverständlich kann die Flüssigkeit F beim
- 35 erfindungsgemäßen Verfahren aber auch jeden anderen bekannten Polymerisationsinhibitor enthalten.

- Bevorzugt beträgt der Sauerstoffgehalt eines solchen Sperrgases 4
- 40 bis 21 Vol.-%. Bei zu fördernden Flüssigkeiten F, deren Flammpunkt (bestimmt nach DIN EN 57) $\leq 50^{\circ}\text{C}$ beträgt, ist ein Sauerstoffgehalt eines Sperrgases von 4 bis 10 Vol.-% ganz besonders bevorzugt.

- 45 Wird beim erfindungsgemäßen Verfahren eine Sperrflüssigkeit verwendet (z.B. 2-Ethylhexanol), so wird diese vorzugsweise so gewählt, daß sie mit der zu fördernden Flüssigkeit F und den

6

darin enthaltenen (Meth)acrylmonomeren verträglich ist.

Erfindungsgemäß bevorzugte Sperrflüssigkeiten sind Mischungen aus Ethylenglycol und Wasser oder die beiden Flüssigkeiten für sich. Besonders bevorzugt sind dabei solche Mischungen, deren Gehalt an
5 Ethylenglycol 30 bis 40 Gew.-% beträgt. Die angesprochenen Ethylenglycol/Wasser-Mischungen zeigen ein ausgezeichnetes Viskositätsverhalten und zeigen sich darüber hinaus unter üblichen Außenbedingungen vergleichsweise gefrierresistent. Erfindungsgemäß sind Sperrflüssigkeiten gegenüber Sperrgasen bevorzugt.

10

Erfindungsgemäß bevorzugt zu verwendende Pumpen sind Kreiselumpen und Seitenkanalpumpen. Als abdichtend wirkende Gleitelemente enthalten sie in der Regel Gleitringdichtungen. Diese bestehen aus einem mit der Antriebswelle fest verbundenen und mit der An-
15 triebswelle umlaufenden Gleitring und einem in der Trennrauminnenwand feststehenden Gegenring.

Eine Feder drückt den Gleitring normalerweise mit einer Vorspannung von 1 bis 2 bar gegen den Gegenring. Sie wird im Betrieb
20 um den erhöhten Druck des zwischen den Gleitringdichtungen befindlichen Sperrmediums ergänzt. Durch den erhöhten Druck des Sperrmediums im Vergleich zum auf der Druckseite der Pumpe herrschenden Druck wird ein Austreten der zu fördernden Flüssigkeit F aus dem Pumpraum verhindert. Figur 2 zeigt das Prinzip einer
25 Gleitringdichtung. Dabei bedeuten: a = umlaufender Gleitring; b = Gehäusewand; c = Gegenring; d = Feder; e = Welle; f = Rundschnurringe (sie oder Faltenbälge können gegen die Welle und die Gehäusewand b abdichten).

30 Infolge des erhöhten Drucks im Sperrmedium tritt normalerweise stetig etwas Sperrmedium in die geförderte Flüssigkeit F. Im Fall einer Sperrflüssigkeit kann diese Leckrate 0,2 bis 5 ml/h betragen, bei 1 m³/h bis 4000 m³/h an Fördermenge. Für Sperrgase beträgt die Leckrate bezogen auf die gleich Fördermenge 120 bis
35 150 Nml/h Sperrgas. Aus Vorratsbehältern wird die Leckrate erfindungsgemäß zweckmäßig kontinuierlich ergänzt.

Das Sperrmedium, z.B. die Sperrflüssigkeit, kann so auch zur Schmierung der Gleitflächen beitragen. Nähere Angaben zur Berechnung und Konstruktion von axialen Gleitringdichtungen finden sich
40 in E. Mayer: Berechnung und Konstruktion von axialen Gleitringdichtungen, Konstruktion 20, 213-219 (1968). Generell ist der Gehalt des Sperrmediums an (Meth)acrylmonomeren in Gew.-% geringer als der der Flüssigkeit F.

45

7

Anders als Hub- und Umlaufkolbenpumpen, die nach dem Verdrängerprinzip arbeiten, arbeiten Kreiselpumpen und Seitenkanalpumpen nach dem dynamischen Prinzip. Durch ein sich drehendes Laufrad (das mit der Antriebswelle verbundene Fördererelement) wird Arbeit in Form von Bewegungsenergie vom Laufrad auf die zu fördernde Flüssigkeit F übertragen. Die Bewegungsenergie wird nach dem Laufrad in einem Leitrad und/oder im Spiralgehäuse zum überwiegenden Teil wieder in statischen Druck (Druckenergie, Gesetz von der Erhaltung der Energien) umgewandelt. Das Laufrad ist vom Prinzip her eine einfache Scheibe, auf der Schaufeln angebracht sind, wie es die Figur 3 beispielhaft zeigt.

Durch die Schaufeln entstehen Schaufelkanäle, deren Querschnitt sich normalerweise von innen nach außen auf Grund des größer werdenden Umfangs sehr stark vergrößert (siehe gestrichelte Linien in Figur 3). Durch diese Schaufelkanäle läßt sich soviel zu fördernde Flüssigkeit F wegschleudern, wie in der Mitte des Laufrades zufließen kann. Im Gegensatz zur Kolbenpumpe strömt die zu fördernde Flüssigkeit F bei der Kreisel- und Seitenkanalpumpe im Betrieb daher permanent.

Im Gegensatz zum offenen Laufrad, das in Figur 3 gezeigt ist, können auch geschlossene Laufräder (Figur 4) eingesetzt werden. Die Schaufelkanäle werden hierbei einfach durch eine zweite Scheibe, die in der Mitte eine Öffnung besitzt, abgedeckt.

Die Draufsicht eines Schaufelrades zeigt die Figur 5. Die Schaufelkrümmung verläuft in der Regel so, wie die natürliche Bahn eines Wassertropfens auf einer rotierenden runden, glatten Scheibe aus der Sicht eines mitrotierenden Beobachters, wenn man den Wassertropfen auf die Scheibenmitte fallen läßt. Diese Schaufelform wird als „rückwärtsgekrümmte“ Schaufel bezeichnet. Es können prinzipiell aber auch bis leicht vorwärtsgekrümmte Schaufeln und auch schraubenförmige, d.h. in sich verdrehte, rückwärts gekrümmte Schaufeln, die mit ihren Schneiden bis in den Laufradeintritt hineinragen und die Flüssigkeit F wie eine Schiffschraube erfassen, verwendet werden (vgl. Fig. 6 und 7, Draufsicht).

Die Funktionsweise einer Kreiselpumpe (eines Kreiselpumpenraums) verdeutlicht die Fig. 8 a, b beispielhaft. Sie besteht aus dem Pumpengehäuse (a) und dem in selbigem rotierenden Laufrad (b), das mit Schaufeln (c) versehen ist. Die Flüssigkeit F tritt axial durch den Saugstutzen (d) ein. Sie wird durch die Fliehkraft radial nach außen gelenkt und vom Laufrad auf diesem Weg auf hohe Geschwindigkeit beschleunigt. Das Pumpengehäuse hat die Aufgabe, die Flüssigkeit F von allen Schaufelkanälen aufzufangen, damit es

gesammelt durch die Druckausgänge (f) weitergeleitet werden kann. Das Pumpengehäuse hat aber gleichzeitig die Aufgabe, Bewegungsenergie der Flüssigkeit F in Druck umzuwandeln. Dazu wird in der Regel ausgenutzt, daß eine Querschnittsvergrößerung
5 die Geschwindigkeit der Flüssigkeit F herabsetzt und dadurch einen Druckanstieg bewirkt. Zur Querschnittsvergrößerung sind zwei konstruktive Ausführungen des Pumpengehäuses üblich. Bei einstufigen Pumpen oder hinter der letzten Stufe mehrstufiger Kreiselpumpen kommen häufig Spiralgehäuse zur Anwendung. Dieses
10 umschließt das Laufrad in Spiralform (e). Der Querschnitt erweitert sich in Richtung auf den Druckausgang (siehe zunehmende Kreisradien in Figur 8b). Die durchfließende Flüssigkeit F wird dadurch verlangsamt, was eine gleichzeitige Druckzunahme bedeutet.

15 Anstelle der Spirale verwendet man, besonders bei mehrstufigen Pumpen, auch feststehende Leiträder (g). Das Leitrad ist im Pumpengehäuse eingebaut und als Ringraum ausgebildet. Es umschließt das Laufrad. Im Leitrad sind Leitschaufeln (h) angeordnet, die
20 zueinander sich nach außen hin stetig erweiternde Kanäle bilden (Fig. 9 und 10). Bei dieser Ausführung wird die Flüssigkeit F nicht direkt in das Pumpengehäuse geschleudert, sondern es durchfließt zunächst die Schaufelkanäle des Leitrads. Durch die Erweiterung in Fließrichtung bewirken sie wiederum eine Verlang-
25 samung der Fließgeschwindigkeit und den dadurch bedingten Druckaufbau. Die Richtung der Leitrادkanäle ist der Richtung der Laufradkanäle normalerweise entgegengesetzt und entspricht am inneren Umfang des Leitrads der Richtung der Austrittsgeschwindigkeit der Förderflüssigkeit aus dem Laufrad. Eine weitere Aufgabe des Leit-
30 rads ist es, bei zweistufigen Kreiselpumpen die Flüssigkeit F zu sammeln und zum Eingang der zweiten Stufe zu führen.

Selbstverständlich kann auch eine Kombination von Leitrad und Spiralgehäuse angewendet werden. Das heißt die Flüssigkeit F wird
35 erst im Leitrad gesammelt, bevor es ins Spiralgehäuse gelangen kann.

Je nach der Form der Laufräder und damit der Austrittsrichtung der Flüssigkeit F unterscheidet man Radial-, Halbaxial- (auch
40 Diagonal- oder Schraubrad-) und Axialpumpen (Propellerpumpen).

Während bisher im wesentlichen nur der Pumpraum beschrieben wurde, soll nachfolgend noch auf den Antriebsraum eingegangen werden. Schnellaufende Kraftmaschinen wie Elektromotoren, Ver-
45 brennungsmotoren oder Dampfturbinen treiben das Laufrad in direkter Kupplung an. Die Kupplung wird durch eine Antriebswelle bewerkstelligt. Deren Lagerung kann ausschließlich im Antriebsraum

untergebracht sein, wie dies die Figur 3 der EP-A 1092874 zeigt. Gegebenenfalls kann aber auch noch im Trennraum gelagert werden. Erfindungsgemäß vorteilhaft ist, daß Kreisel- und Seitenkanalpumpen mit einer einfachen Lagerung der Antriebswelle auskommen können. Dies ist durch die Leichtigkeit des Laufrades bedingt.

Der Pumpraum des erfindungsgemäßen Verfahrens kann aber auch als mehrstufige Kreiselpumpe gestaltet sein, wie es in Pumpen in der Feuerwehr, Teil I, Einführung in die Hydromechanik, Wirkungsweise der Kreiselpumpen, 4. Auflage 1998, Verlag W. Kohlhammer, Berlin beschrieben ist. Einstufige Kreiselpumpen sind erfindungsgemäß bevorzugt.

Bei einem Seitenkanalpumpenraum (vgl. Fig. 11) rotiert ein schmales Laufrad (a) mit offenen Schaufeln (b) im Gehäuse (c), in welchem neben den Schaufeln ein Seitenkanal über den größten Teil des Umfangs herumführt. Die zu fördernde Flüssigkeit tritt nicht in der Achse, sondern durch einen Schlitz (d) aus der Stirnfläche in die Schaufelkammern ein, wobei gleichzeitig die sich bereits in den Kammern befindende Flüssigkeit durch die Fliehkraft nach außen getrieben wird. Im Bereich der Schaufelenden wird die Strömung an der Gehäusewand in den Seitenkanal umgelenkt, wo sie eine Schraubenbahn beschreibt und nach einem Stück Wegs erneut ins Laufrad eintritt. Dieser Vorgang wiederholt sich für ein Flüssigkeitsteilchen auf dem Weg vom Saug- zum Druckstutzen je nach Durchsatz z.B. 10 bis 50 mal. In den Schaufelkammern wird die Flüssigkeit außer in radialer Richtung auch auf die Umfangsgeschwindigkeit des Rades beschleunigt. Mit dieser Umfangsgeschwindigkeit und der dieser überlagerten Zirkulationsgeschwindigkeit tritt das Flüssigkeitsteilchen aus dem Laufrad in den Seitenkanal über. Auf der weiteren Schraubenbahn wird die Zirkulationskomponente nur wenig durch Wandreibung, die Umfangskomponente dagegen stark und im wesentlichen nur infolge des Druckaufbaus verlangsamt. Der Verlust an kinetischer Energie der resultierenden Strömung wird im Laufrad immer wieder ausgeglichen.

Seitenkanalpumpen haben einen geringeren Wirkungsgrad als Kreiselpumpen, erzeugen aber einen höheren Förderdruck.

Erfindungsgemäß zu verwendende Pumpen werden z.B. von der Hermetic-Pumpen GmbH, Deutschland, hergestellt.

Sie sind in der Lage Förderhöhen von 15 m und mehr zu überwinden. Erfindungsgemäß vorteilhaft ist, daß Pumpenraum und Antriebsraum nicht notwendigerweise übereinander, sondern erfindungsgemäß bevorzugt nebeneinander angeordnet sein können. Letzteres bedingt in notwendiger Weise horizontal gelagerte Antriebswellen, was

10

längere Laufzeiten gewährleistet. Der Antriebsraum kann einschließlich des Antriebs wie in der Figur 3 der EP-A 1092874 gestaltet sein. Der Pumpenraum ist erfindungsgemäß bevorzugt aus Edelstahl 1.4571 (nach DIN EN 10020) gefertigt. Er kann aber auch aus Kunststoff, Beton, Keramik oder Grauguß gefertigt sein. Als Material für die Gleitelemente (Gleitringdichtungen) ist SiC bevorzugt.

Anstelle der erfindungsgemäß zu verwendenden Förderpumpen mit Antriebswelle könnten prinzipiell auch Pumpen ohne Antriebswelle wie z.B. Membranpumpen, vorzugsweise Druckluft-Membranpumpen, verwendet werden. Sie erfüllen ebenfalls das der erfindungsgemäßen Aufgabe zugrunde liegende Anforderungsprofil (kein Kontakt der zu fördernden Flüssigkeit mit mechanisch stark beanspruchten Teilen wie Lagern, keine Leckagen für die Flüssigkeit F). Sie sind jedoch nicht so leistungsfähig wie die erfindungsgemäß zu verwendenden Förderpumpen.

Prinzipiell arbeiten Membranpumpen wie Kolbenpumpen, wobei eine biegsame Membran, die aus Kunststoff oder Edelstahl bestehen kann, den Kolben vertritt.

Die Membran - deren Heben und Senken die Flüssigkeit über Ventile abwechselnd ansaugt und ausstößt - wird durch direkte Kupplung mit z.B. einem Antriebsgestänge in Bewegung versetzt. Die Membran trennt den Arbeitsraum (Pumpraum) vollständig vom Antrieb. Die erfindungsgemäß relevante Dichtungsproblematik besteht bei ihnen somit nicht. Desweiteren sind eventuelle Antriebslager in notwendiger Weise außerhalb des Arbeitsraums.

30

Typische Betriebsdaten von erfindungsgemäß zu verwendenden Förderpumpen sind:

Durchsatz (m^3/h): 2 bis 4000
Förderhöhe (m): bis 60
Viskosität der Förderflüssigkeit F (mPas): 0,5 bis 50
Drehzahl (min^{-1}): 800 bis 3000

Anschließend sei festgehalten, daß in dieser Schrift unter einem Lager ganz allgemein ein Maschinenelement zum Tragen oder Führen von relativ zueinander beweglichen Maschinenteilen verstanden werden soll, wobei es die auftretenden Kräfte aufnimmt und auf das Gehäuse, Bauteil oder Fundament ableitet.

45

11

Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich insbesondere dann, wenn das (Meth)acrylmonomere (Meth)acrylsäure ist. Vor allem dann, wenn der (Meth)acrylsäuregehalt ≥ 95 Gew.-% beträgt.

5 Beispiele

Beispiel 1

Durch zweistufige katalytische Gasphasenoxidation von Propylen
10 mit molekularem Sauerstoff wurde ein gasförmiges Produktgasgemisch mit folgender Zusammensetzung erzeugt:

9,84 Gew.-% Acrylsäure,
0,4 Gew.-% Essigsäure,
15 4,4 Gew.-% Wasser,
0,11 Gew.-% Acrolein,
0,21 Gew.-% Formaldehyd,
0,07 Gew.-% Maleinsäureanhydrid sowie als
Restmenge bis 100 Gew.-% Propionsäure, Furfural, Propan,
20 Propen, Stickstoff, Sauerstoff und Kohlenoxide.

Dieses gasförmige Produktgasgemisch wurde in einem Sprühkühler (Direktkühler, Quench) durch Eindüsen von Roh-Acrylsäure (4000 l/h) abgekühlt (die Temperatur der Roh-Acrylsäure betrug
25 95°C; die zum Direktkühlen verwendete Roh-Acrylsäure enthielt als Startkonzentrationen 1,1 Gew.-% Wasser und 1000 gew.ppm Phenthiazin als Polymerisationsinhibitor). Die zum Quenchen verwendete Roh-Acrylsäure wurde dabei mittels einer Umlaufpumpe über einen Wärmetauscher im Kreis geführt und immer wieder neu auf die
30 95°C eingestellt.

Als Umlaufpumpe wurde eine erfindungsgemäße Kreiselpumpe vom Typ Hermetic-Pumpe, Modell HK (Hersteller: Hermetic-Pumpen GmbH, DE) eingesetzt. Als Sperrflüssigkeit wurde 2-Ethylhexanol verwendet.
35 Die Leckrate betrug 14 g 2-Ethylhexanol pro Tag. Die Sperrflüssigkeit stand unter einem Druck von 4 bar. Der Trennraum war mit doppelt wirkenden Gleitringdichtungen aus SiC ausgerüstet (Material der rotierenden Scheibe). Die Antriebswelle war horizontal gelagert.

40 Das den Sprühkühler verlassende, die abzutrennende Acrylsäure enthaltende, abgekühlte Gasgemisch wurde unterhalb des untersten Bodens in eine Rektifikationskolonne geführt, die mit 27 Glockenböden und am Kopf der Kolonne mit einem Sprühkondensator ausgerüstet war.
45 Die Temperatur am Kopf der Kolonne betrug 20°C und die Sumpftemperatur der Rektifikationskolonne lag bei 90°C.

12

Das im Sprühkondensator anfallende Kondensat, das hauptsächlich aus Wasser bestand, wurde ausgeschleust und nach Zusatz von 300 Gew.ppm Hydrochinon und Kühlung in einem Wärmetauscher als Sprühflüssigkeit mit einer Temperatur von 17°C über den Sprüh-
5 kondensator als Rücklauf wieder auf den obersten Kolonnenboden aufgebracht. Das Rücklaufverhältnis betrug 4.

Die im Sumpf der Rektifikationskolonne anfallende Roh-Acrylsäure wurde teilweise ausgeschleust (430 g/h), teilweise (250 g/h) nach
10 Zusatz von 1000 gew.ppm Phenothiazin zum Zweck der Polymerisationsinhibierung der Rektifikationskolonne auf den 13. Boden der Kolonne (von unten gerechnet) rückgeführt und teilweise (ca. 15 l/h) zunächst über einen Wärmetauscher geführt und dann mit einer Temperatur von 100°C auf den 2. Boden der Kolonne (von unten
15 gerechnet) zur Einstellung der Kolonnentemperatur rückgeführt.

Ein weiterer Teil der im Kolonnensumpf anfallenden Roh-Acrylsäure wurde zum Flüssigkeitsausgleich im Quench demselben standgeregelt über einen dem Quench vorgeschalteten Wärmetauscher mit einer
20 Temperatur von 102°C zugeführt.

Die ausgeschleuste Roh-Acrylsäure enthielt 97,2 Gew.-% Acrylsäure, 1,6 Gew.-% Essigsäure, 0,024 Gew.-% Propionsäure, 0,4 Gew.-% Maleinsäure, 0,005 Gew.-% Acrolein, 0,02 Gew.-% Furfural und
25 1,2 Gew.-% Wasser sowie 500 gew.ppm Phenothiazin und 300 gew.ppm Hydrochinon.

Das vorstehend beschriebene Verfahren wurde ohne Unterbrechung während 10 Tagen betrieben. Am Ende der 10 Tage war der gesamte
30 Quenchkreis einschließlich der Pumpe frei von polymeren Ablagerungen.

Vergleichsbeispiel

35 Es wurde wie im Beispiel 1 verfahren. Als Umlaufpumpe im Quench wurde jedoch eine Druckluftmembranpumpe vom Typ Almatec-Pumpe Baureihe FP-100, Ausführung Polytetrafluorethylen (PTFE) der Almatec Maschinenbau GmbH, DE verwendet. Die Pumpe war vollständig aus Teflon gefertigt. Auch hier war der gesamte Quenchkreis ein-
40 schließlich Pumpe nach 10 Tagen noch frei von polymeren Ablagerungen.

Vergleichsbeispiel 2

45 Es wurde wie in Beispiel 1 verfahren. Als Umlaufpumpe im Quench wurde eine Zahnradpumpe vom Typ Hermetic-Pumpe, Typ ZML hermetisch der Hermetic-Pumpen GmbH, DE eingesetzt. Bei einer Zahnrad-

13

pumpe wird die zu fördernde Flüssigkeit durch sich gegenseitig drehende und ineinandergreifende Zahnräder verdrängt und dadurch weitergefördert.

- 5 Die Antriebswellen der Zahnräder waren aufgrund ihres Gewichts auch im Pumpenraum gelagert. Diese Gleitlager waren aus graphitgebundener Kohle gefertigt.

10 Innerhalb von weniger als 10 Stunden Betriebsdauer war die Zahnradpumpe durch Polymerisatbildung blockiert.

Vergleichsbeispiel 3

- 15 Wie Vergleichsbeispiel 2, die Gleitlager waren jedoch aus SiC gefertigt. Innerhalb von weniger als 10 Stunden Betriebsdauer war die Zahnradpumpe durch Polymerisatbildung blockiert.

Vergleichsbeispiel 4

- 20 Es wurde wie im Beispiel 1 verfahren. Als Umlaufpumpe im Quench wurde eine Kreiselpumpe vom Typ CP-Pumpe, Pumpentyp MKP 32-160 (CP-Pumpen AG, DE) eingesetzt. Pumpenraum und Antriebsraum sind durch eine Metallwand getrennt. Der Antrieb im Pumpenraum erfolgte magnetgekoppelt. Die Antriebswelle war im Pumpenraum mit
25 einem Wellenlager aus SiC gelagert.

Innerhalb von weniger als 10 Stunden Betriebsdauer war die Kreiselpumpe durch Polymerisatbildung blockiert.

30 Beispiel 2

- Es wurde wie in Beispiel 1 verfahren. Als Umlaufpumpe im Quench wurde eine Kreiselpumpe vom Typ Hermetic Pumpe Modell HK (Hermetic Pumpen GmbH) eingesetzt. Die Pumpe wurde unter Verwendung
35 einer trocken laufenden, berührungsfreien und gasgeschmierten Wellenabdichtung erfindungsgemäß umgebaut und war mit doppelt wirkenden Gleitringdichtungen aus SiC ausgerüstet.

Als Sperrgas wurde Luft verwendet, die unter einem Druck von
40 4 bar stand.

Die Leckrate betrug 100 Nml/h.

- Nach 10 Tagen Betriebsdauer war der gesamte Quenchkreis, ein-
45 schließlich Pumpe, noch immer frei von polymeren Ablagerungen.

Verfahren zum Fördern einer wenigstens ein (Meth)acrylmonomeres
enthaltenden Flüssigkeit F

5 Zusammenfassung

Ein Verfahren zum Fördern einer wenigstens ein (Meth)acrylmonomeres
enthaltenden Flüssigkeit F mittels einer Pumpe, bei der Pump-
raum und Antriebsraum durch einen Trennraum getrennt sind, der
10 mit einem unter erhöhtem Druck stehenden Sperrmedium gefüllt und
mit doppelt wirkenden Gleitringdichtungen abgedichtet ist.

15

20

25

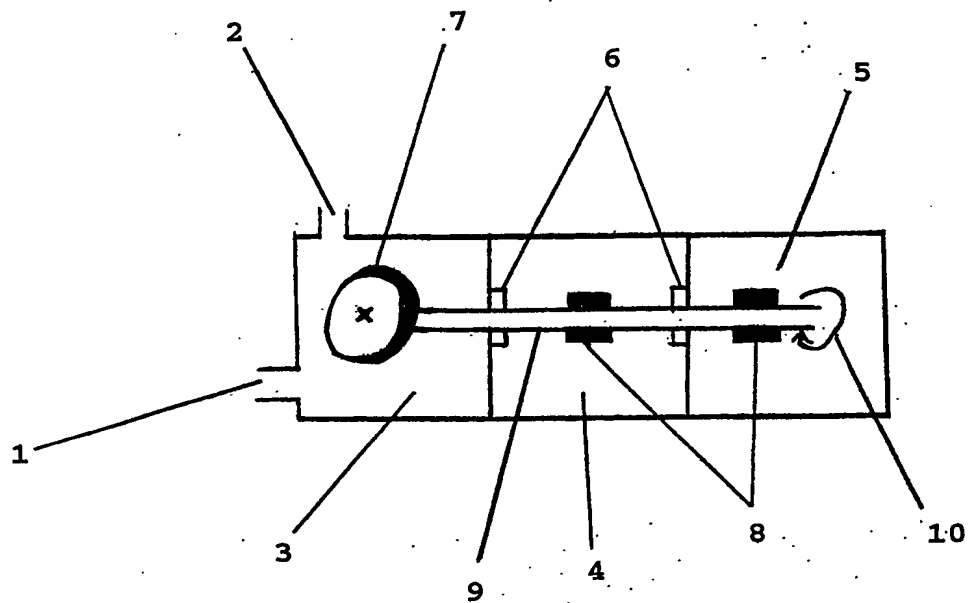
30

35

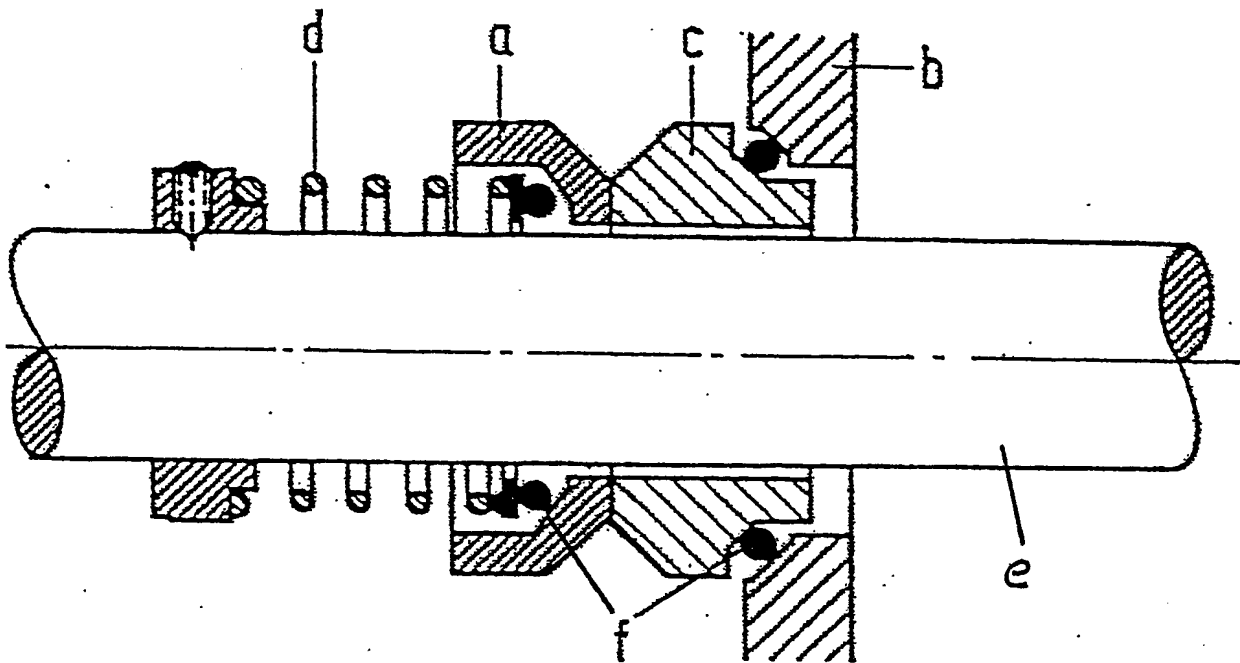
40

45

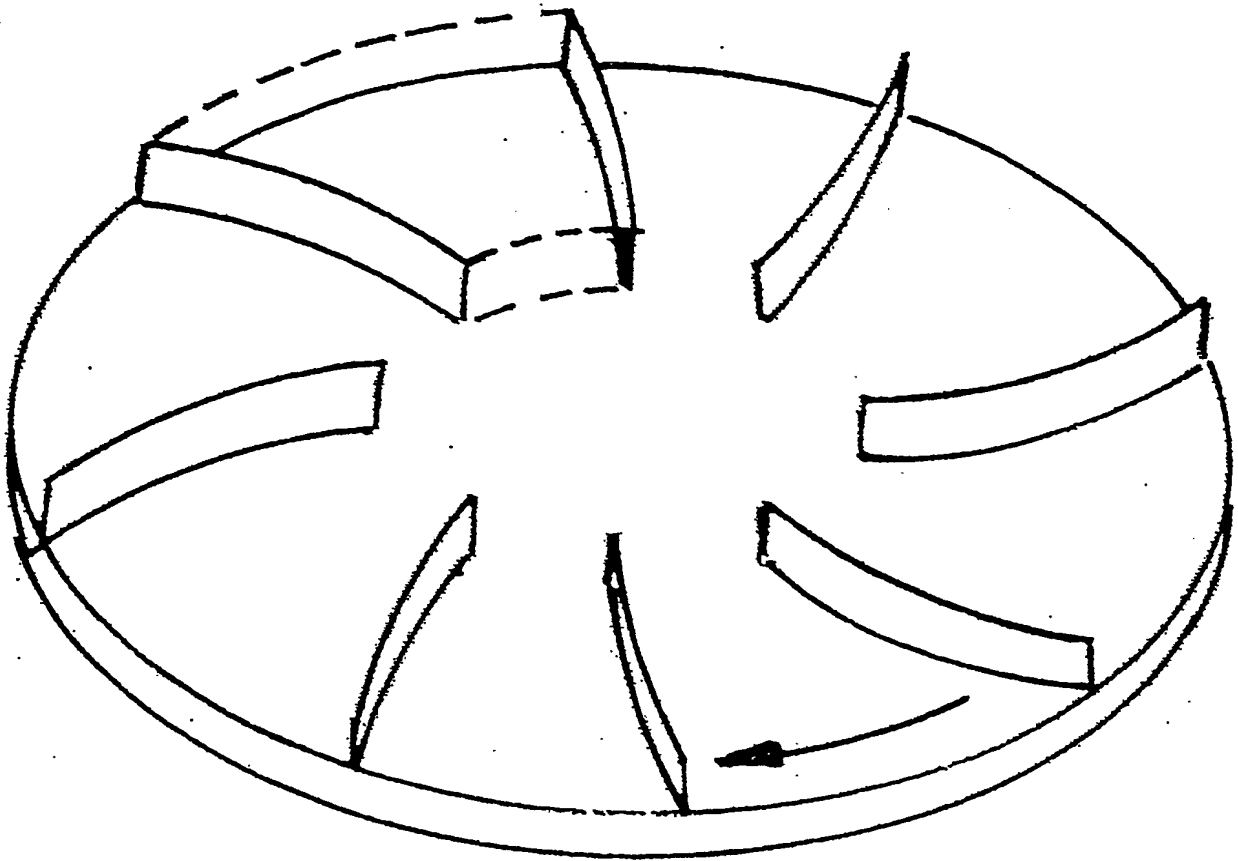
Figur 1



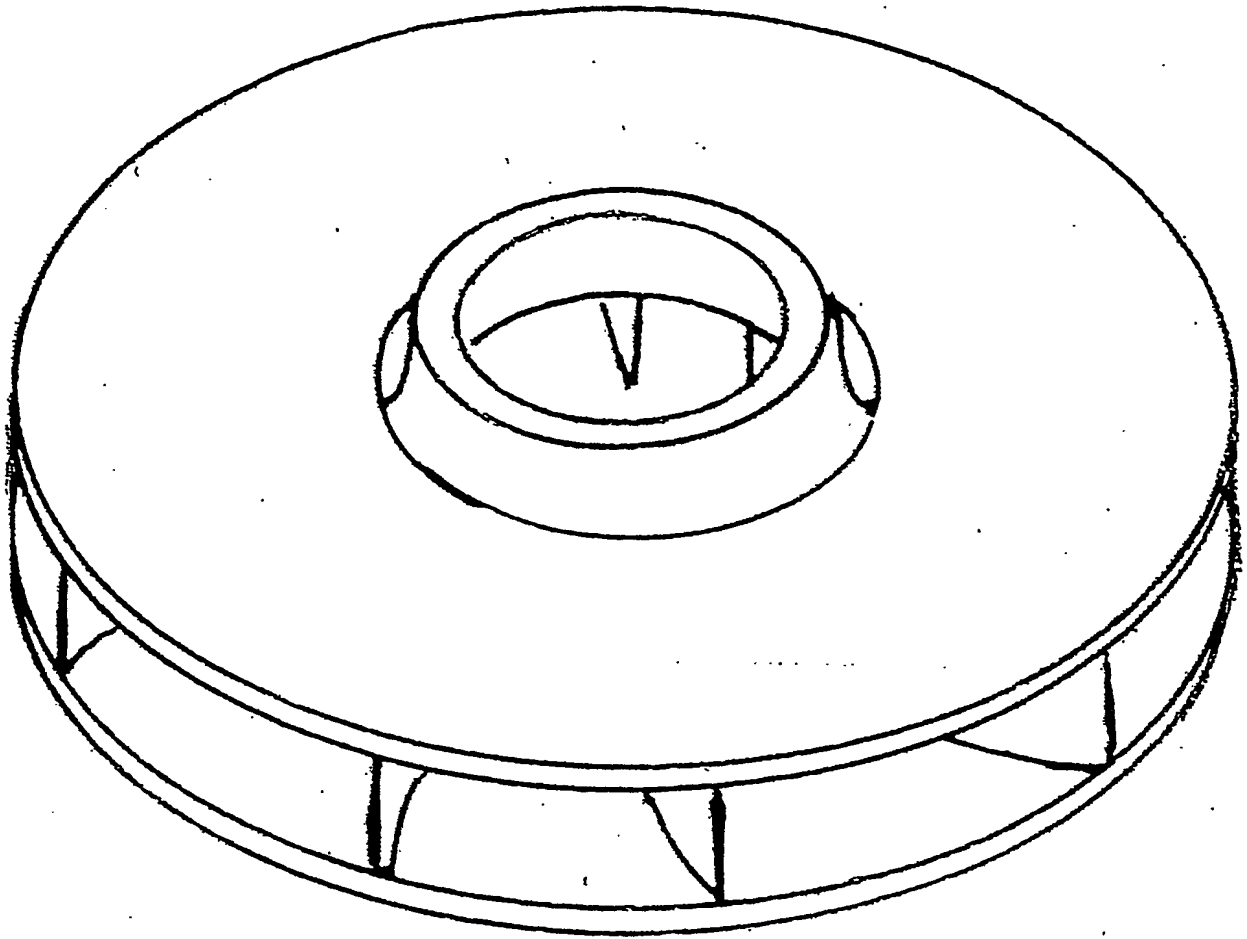
Figur 2



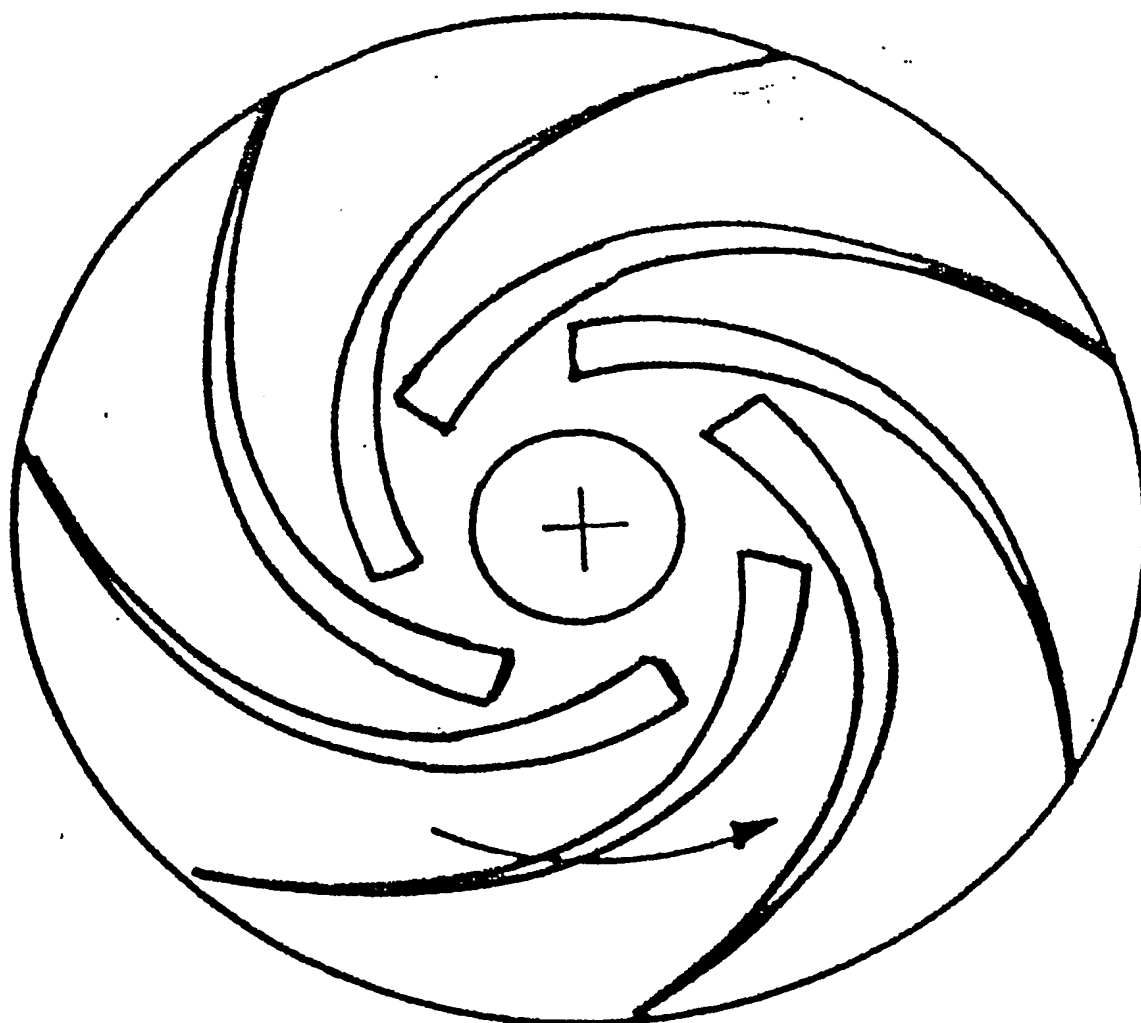
Figur 3



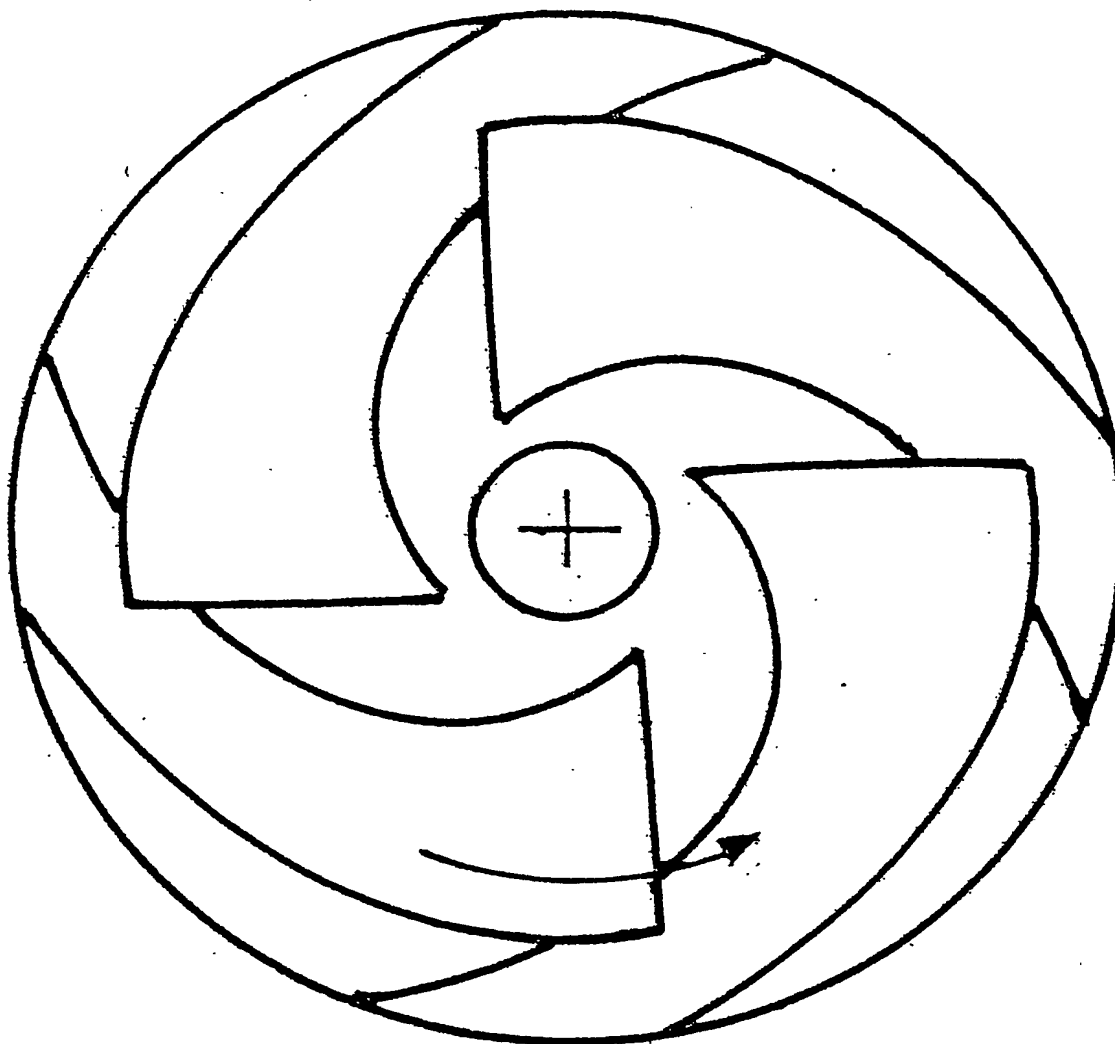
Figur 4



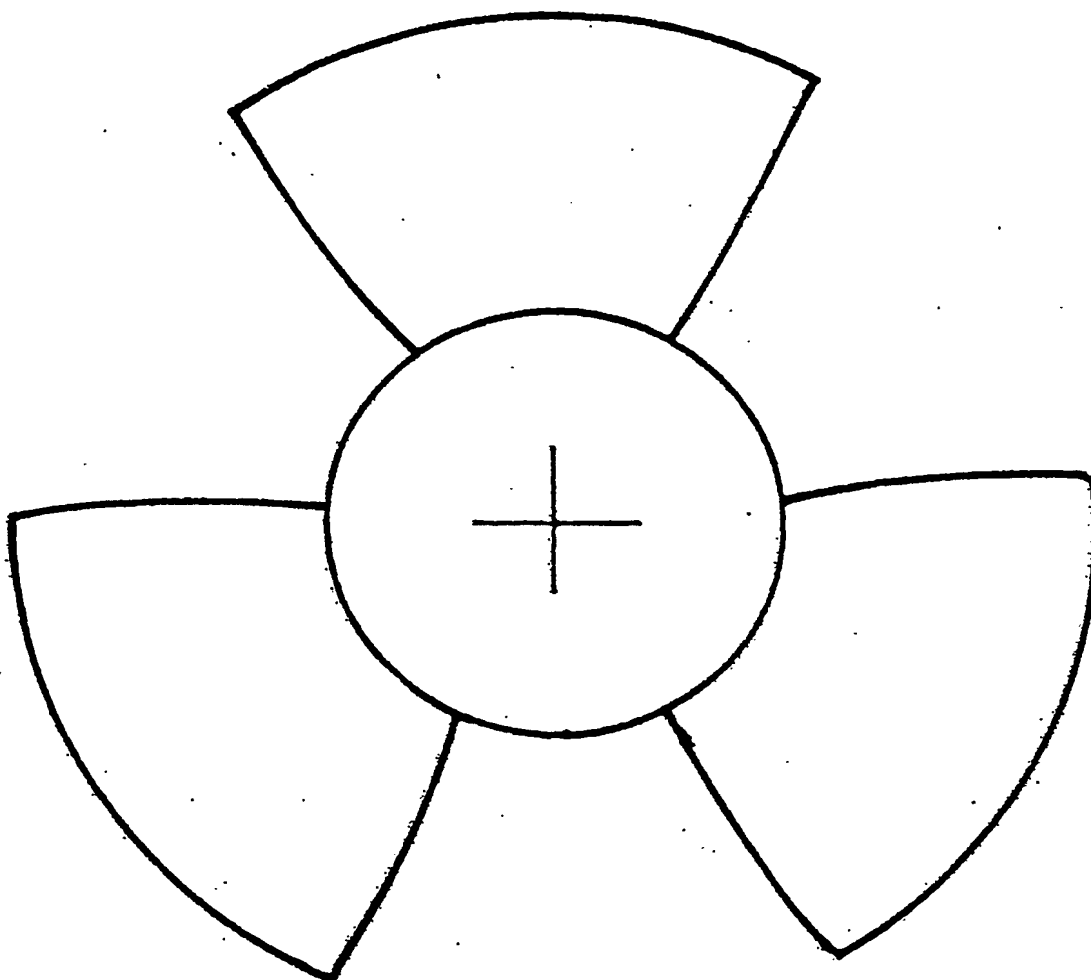
Figur 5



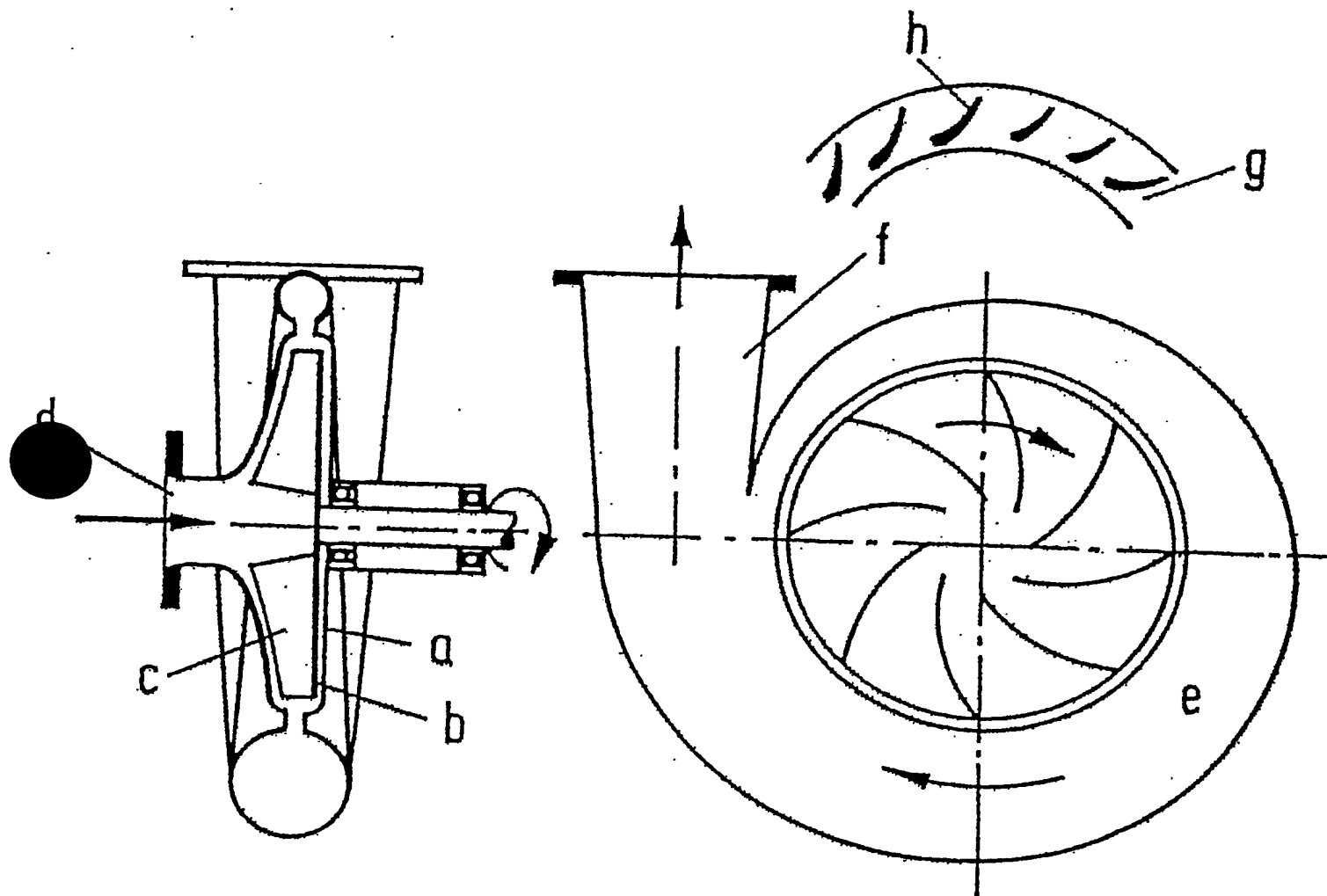
Figur 6



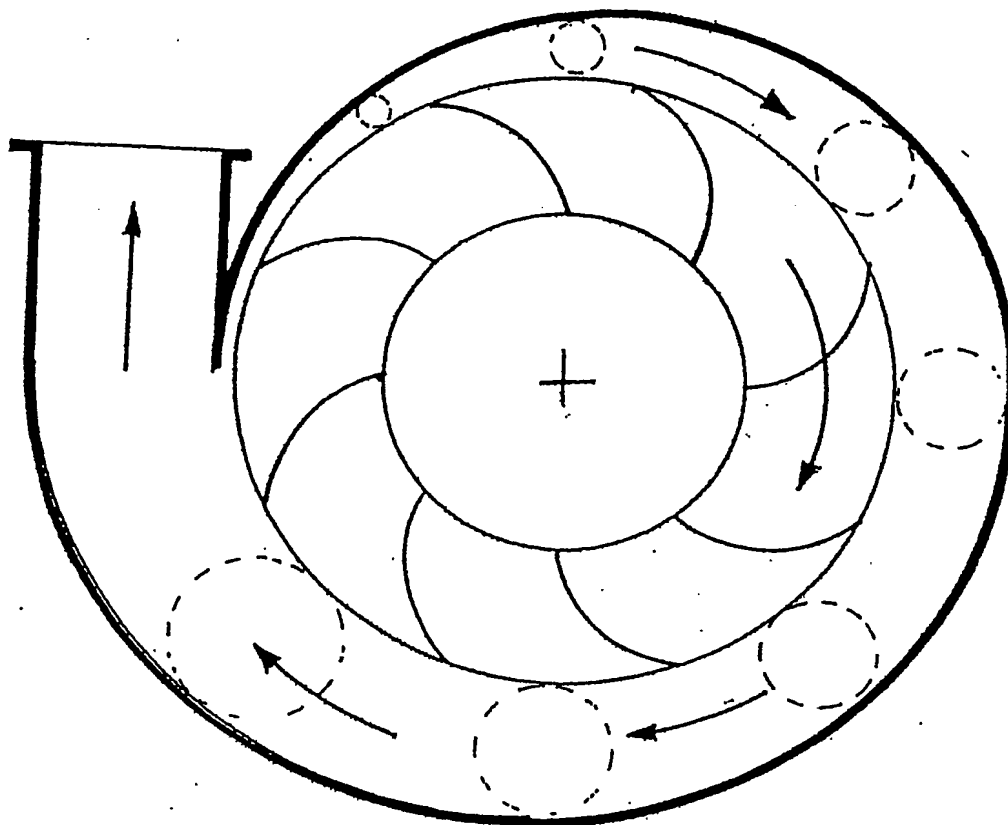
Figur 7



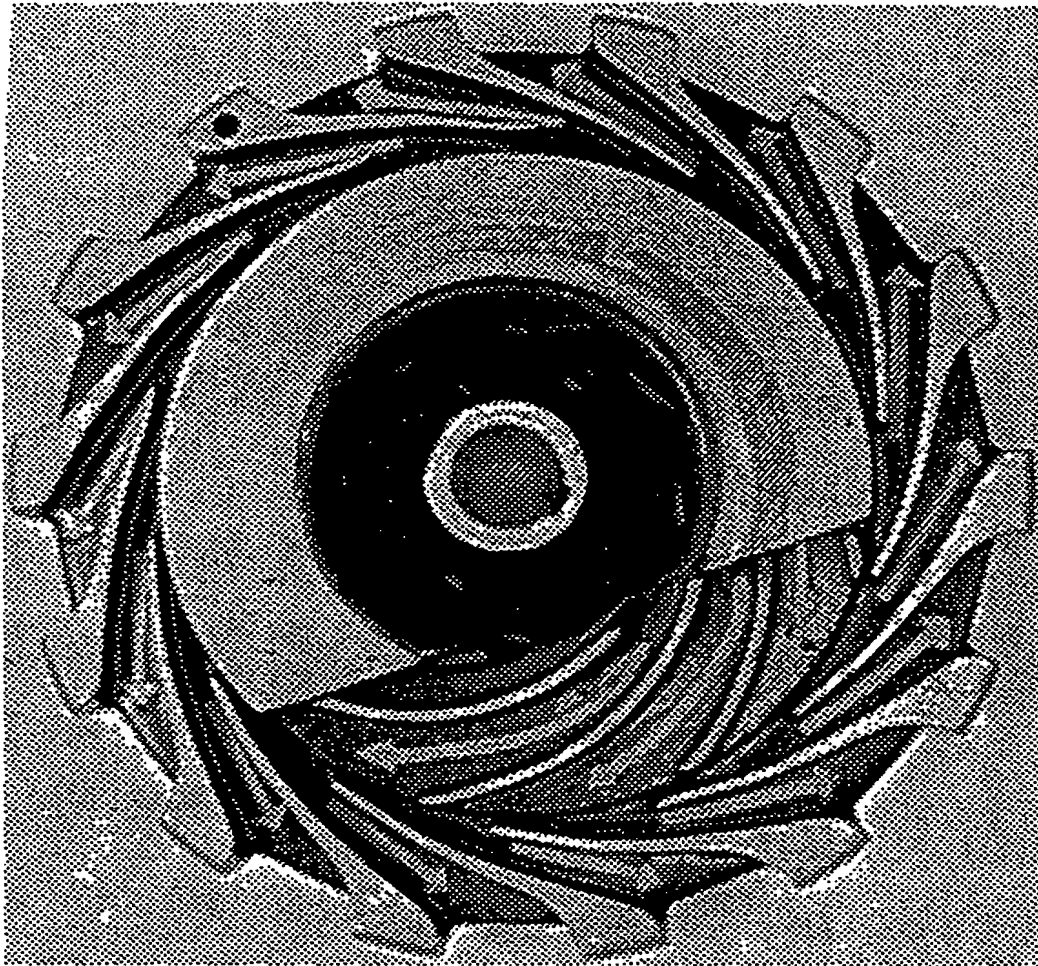
Figur 8a



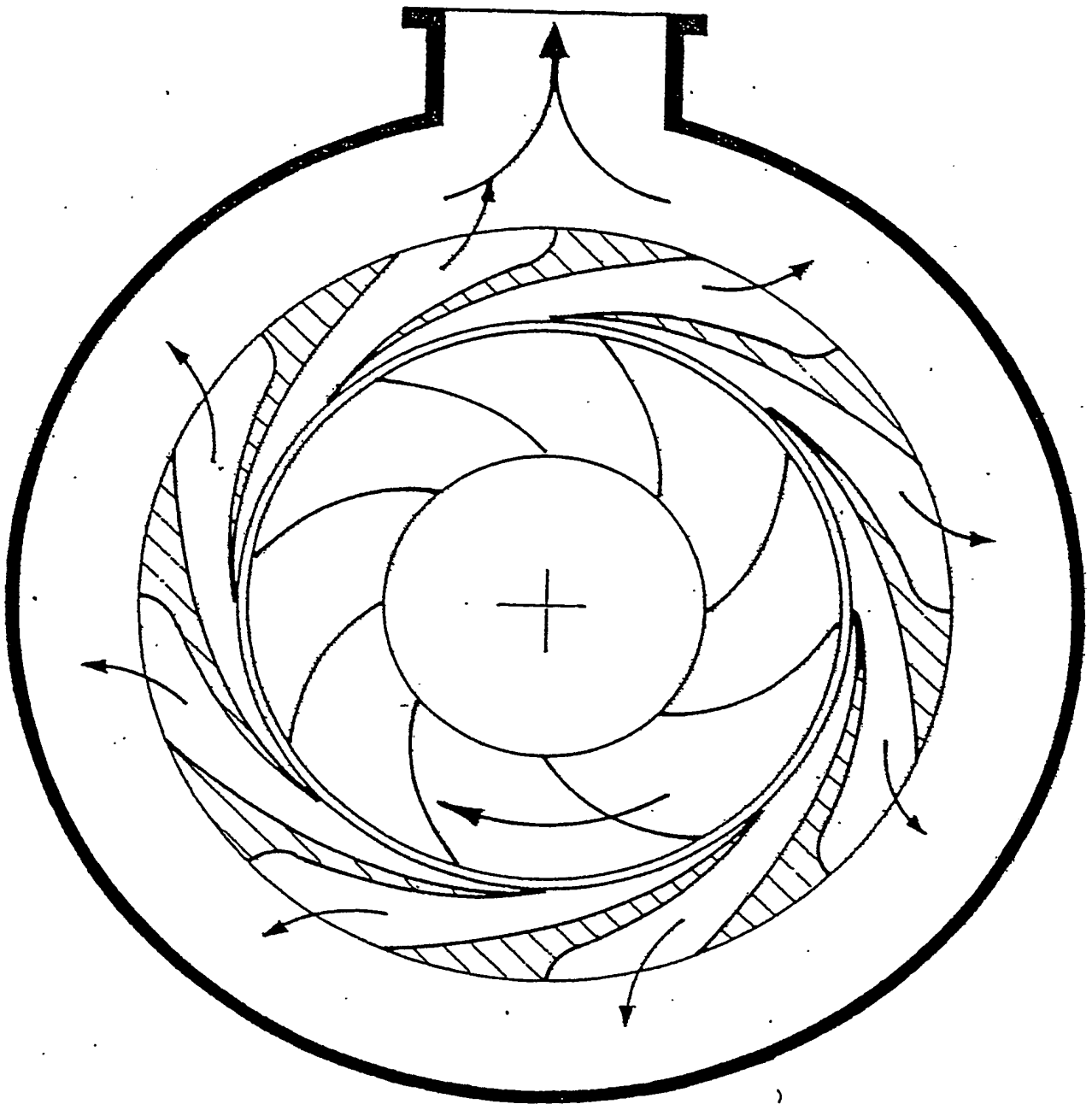
Figur 8b



Figur 9



Figur 10



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.